

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-225577

⑤ Int. Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 昭和63年(1988)9月20日

C 04 B 35/49

H 01 B 3/12

H 01 L 41/18

3 1 3

T-7412-4G

8623-5E

7131-5F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全12頁)

⑬ 発明の名称 圧電磁器組成物

⑭ 特 願 昭62-56822

⑮ 出 願 昭62(1987)3月13日

⑯ 発 明 者 酒 井 秀 樹 東京都杉並区久我山1丁目7番41号 岩崎通信機株式会社内

⑯ 発 明 者 入 田 丈 司 東京都杉並区久我山1丁目7番41号 岩崎通信機株式会社内

⑰ 出 願 人 岩崎通信機株式会社 東京都杉並区久我山1丁目7番41号

⑱ 代 理 人 弁理士 青 木 朗 外5名

明 細 書

1. 発明の名称

圧電磁器組成物

2. 特許請求の範囲

1. 一般式:



で表わされる主成分と、該主成分に対して0.1～2.0wt%の HfO_2 又は0.1～1.0wt%の Sb_2O_3 である副成分とからなることを特徴とする圧電磁器組成物。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、圧電セラミックス、より詳しくは $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{TiZrO}_3$ の三成分系圧電磁器組成物に関するものである。

(従来の技術)

圧電性磁器材料としては従来より各種のものが知られており、特にPZT系($\text{Pb}(\text{Zr-Ti})\text{O}_3$ 系)磁器の実用化が進んでいる。このPZT系磁器は

2成分系圧電材料であり、これよりも電気機械結合係数、比誘電率や温度特性の組成による選択の余地が大きくできる3成分系圧電材料が提案されている(例えば、高橋、本多、山下:圧電セラミックス材料、最新ファインセラミックス技術、(1983)、p.41〔工業調査会〕参照)。そして、特開昭61-117158号公報にて $\text{Pb}(\text{Sb}_{1-x}\text{W}_x)\text{TiZrO}_3$ 系の3成分系圧電磁器組成物が、また、特公昭47-47959号公報にて $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{TiZrO}_3$ の3成分系圧電磁器組成物が提案されている。

(本発明が解決しようとする問題点)

本発明は、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{TiZrO}_3$ の3成分系圧電磁器組成物において、電気機械結合係数 k_r および比誘電率 ϵ_{33}/ϵ を向上させることを目的としている。

本発明は、また、径方向電気機械係数および比誘電率が大きくて感度の良い音響変換素子(例えば、圧電送受波器、圧電ブザー)に適した $\text{Pb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Nb}_x)\text{TiZrO}_3$ 系圧電磁器組成物を提供す

ることを目的としている。

本発明は、音響変換素子としての使用に適した k_r が0.55以上かつ ϵ_{33}/ϵ_0 が2000以上である特性を有する圧電磁器組成物を提供することを目的としている。

(問題点を解決するための手段)

上述の目的が、一般式： $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$ で表わされる主成分と、該主成分に対して0.1～2.0wt%の HfO_2 又は0.1～1.0wt%の Sb_2O_3 である副成分とからなる圧電磁器組成物によって達成される。

HfO_2 (酸化ハフニウム) 量 (添加量) は0.1wt%以下では電気機械結合係数 k_r および比誘電率 ϵ_{33}/ϵ_0 の向上に効果がなく、一方、2.0wt%以上では特に比誘電率の向上が一段と低下する。また、 Sb_2O_3 (三酸化アンチモン) 量 (添加量) についても同様に0.1wt%以下では k_r および ϵ_{33}/ϵ_0 の向上に効果がなく、一方、1.0wt%以上では k_r および ϵ_{33}/ϵ_0 が低下する。

れる五角形範囲内にあるのが望ましい (ただし、 $x + y + z = 1$)。

(実施例)

以下、添付図面を参照して比較例を含む実施例によって本発明をより詳しく説明する。

例 1

(HfO_2 を副成分とする場合)

圧電磁器の試料を次のようにして製作した。まず、出願原料として高純度の酸化鉛 PbO 、酸化ニッケル NiO 、五酸化ニオブ Nb_2O_5 、酸化チタン TiO_2 および酸化ジルコニウム ZrO_2 を所定の配合比 (第1表および第2表の主成分組成割合) に秤量し、ボールミルにて8～15時間湿式混合し、均一なスラリーとした。このスラリーを乾燥させた後に、800～900℃にて1～3時間仮焼した。仮焼物をボールミルにて粉砕し同時に所定量 (第1表および第2表中の主成分に対する重量%) 高純度の酸化ハフニウム HfO_2 を加えて2～10時間湿式混合した。この混合粉にバインダーとして樹脂

特に、音響変換素子用圧電磁器組成物としては、 HfO_2 を副成分としている場合には、主成分 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$ において、モル比 x 、 y および z が、添付第1図に示すように、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - \text{PbTiO}_3 - \text{PbZrO}_3$ の三元図で点 A ($x = 0.500$, $y = 0.365$, $z = 0.135$)、点 B ($x = 0.550$, $y = 0.300$, $z = 0.150$)、点 C ($x = 0.200$, $y = 0.400$, $z = 0.400$) および点 D ($x = 0.200$, $y = 0.45$, $z = 0.35$) で囲まれる四角形範囲内にあるのが望ましい (ただし、 $x + y + z = 1$)。

そして、 Sb_2O_3 を副成分としている場合には、主成分 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$ において、モル比 x 、 y および z が、添付第3図に示すように、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - \text{PbTiO}_3 - \text{PbZrO}_3$ の三元図で点 A ($x = 0.500$, $y = 0.350$, $z = 0.150$)、点 B ($x = 0.530$, $y = 0.320$, $z = 0.150$)、点 C ($x = 0.400$, $y = 0.340$, $z = 0.260$)、点 D ($x = 0.250$, $y = 0.400$, $z = 0.350$) および点 E ($x = 0.250$, $y = 0.425$, $z = 0.325$) で囲ま

(例えば、ポリビニルアルコール・PVA) を1wt%添加混練し、約1ton/cm²の圧力で直径14mm、厚さ1mmの円板に加圧成形した。そして、成形した円板を1180～1300℃にて1～5時間焼成した。この焼成品に銀ペーストを所定パターンで焼付けして電極を形成し、80～150℃のオイル中で10～20分間、2～5kV/mmの直流電圧を印加して分極処理を行なった。このようにして HfO_2 を含有した (又は含有しない) $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$ 圧電磁器組成物 (試料No. 1～13, 14～49) が作られた。

得られた圧電磁器組成物の径方向電気機械結合係数 k_r 、比誘電率 ϵ_{33}/ϵ_0 、および誘電損失 $\tan \delta$ を測定して、その結果を第1表および第2表に示す。

以下余白

第 1 表

試料 No	主 成 分 (mol)			HfO ₂ (wt%)	k _r	$\frac{\tau}{\epsilon_{33}}/\epsilon_0$	誘電損失 tan δ
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
1 ※	0.36	0.385	0.255	0	0.608	4330	1.50
2	"	"	"	0.1	0.611	4390	1.44
3	"	"	"	0.2	0.616	4540	1.59
4	"	"	"	0.3	0.617	4560	1.57
5	"	"	"	0.4	0.618	4580	1.54
6	"	"	"	0.5	0.621	4620	1.60
7	"	"	"	0.6	0.624	4670	1.71
8	"	"	"	0.8	0.629	4720	1.71
9	"	"	"	1.0	0.633	4800	1.68
10	"	"	"	1.2	0.641	4840	1.78
11	"	"	"	1.4	0.637	4880	1.90
12	"	"	"	1.6	0.638	4710	2.00
13	"	"	"	2.0	0.636	4470	2.22

注：※ No 1 試料はHfO₂無添加の場合である。

第1表では主成分を一定としてHfO₂添加量を変えた場合であり、HfO₂添加によって無添加の場合よりもk_r、 $\frac{\tau}{\epsilon_{33}}/\epsilon_0$ 、およびtan δ のいずれも大きくなり、1.2～1.4 wt%の添加量が最も好ましいことがわかる。

下記第2表では主成分の組成割合を変えて、HfO₂添加量を1.2 wt%と一定にした場合であり、試料の組成を第1図の三元図中に示す。そして、HfO₂無添加の比較試料の結果も第2表中に示す。第2表から主成分がどのような場合であっても、HfO₂添加によってk_r、 $\frac{\tau}{\epsilon_{33}}/\epsilon_0$ 、およびtan δ の全てについて大きくなっている。そして、第1図中の四角形A、B、CおよびDで囲まれた領域においては、k_rが0.55以上でありかつ $\frac{\tau}{\epsilon_{33}}/\epsilon_0$ が2000以上であって、音響変換素子として用いる好ましい範囲である。

以下余白

第 2 表

試料 No	主 成 分 (mol)			HfO ₂ (wt%)	k r	$\frac{\epsilon_r}{\epsilon_0}$	誘電損失 tan δ (X)
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
14 系	0.60	0.30	0.10	0	0.34	6930	2.30
15 系	"	"	"	1.2	0.42	7410	2.68
16 系	"	0.20	0.20	0	0.30	3730	2.13
17 系	"	"	"	1.2	0.33	3840	2.57
18 系	0.55	0.35	0.10	0	0.38	5260	2.03
19 系	"	"	"	1.2	0.44	5410	2.10
20 系	"	0.30	0.15	0	0.53	5370	2.22
(B) 21	"	"	"	1.2	0.57	5930	2.54
22 系	0.50	0.365	0.135	0	0.53	4120	1.98
(A) 23	"	"	"	1.2	0.56	4850	2.30
24 系	"	0.35	0.15	0	0.58	6460	2.22
25	"	"	"	1.2	0.61	6700	2.61
26 系	0.45	"	0.20	0	0.62	6180	2.44
27	"	"	"	1.2	0.65	6420	2.20
28 系	0.40	0.40	"	0	0.51	3090	1.15
29 系	"	"	"	1.2	0.54	3220	1.32

第 2 表 (続き)

試料 No	主 成 分 (mol)			HfO ₂ (wt%)	k r	$\frac{\epsilon_r}{\epsilon_0}$	誘電損失 tan δ (X)
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
30 系	0.40	0.365	0.235	0	0.63	4010	2.05
31	"	"	"	1.2	0.64	4270	2.52
32 系	"	0.33	0.27	0	0.52	1640	2.80
33 系	"	"	"	1.2	0.54	1970	2.90
34 系	0.35	0.45	0.20	0	0.43	1810	0.95
35 系	"	"	"	1.2	0.49	2020	1.12
36 系	"	0.40	0.25	0	0.56	3130	1.06
37	"	"	"	1.2	0.57	3680	1.20
38 系	0.30	"	0.30	0	0.66	3100	1.46
39	"	"	"	1.2	0.68	3410	1.54
40 系	0.25	"	0.35	0	0.57	2030	1.10
41	"	"	"	1.2	0.59	2330	1.32
42 系	0.20	0.50	0.30	0	0.41	1020	1.86
43 系	"	"	"	1.2	0.42	1090	1.90
44 系	"	0.45	0.35	0	0.54	1890	1.22
(D) 45	"	"	"	1.2	0.56	2150	1.32

第 2 表 (続き)

試料 No.	主 成 分 (mol)			HfO ₂ (wt%)	k _r	$\frac{\tau}{\epsilon_{33}/\epsilon_0}$	誘電損失 tan δ (%)
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
46※	0.20	0.40	0.40	0	0.50	1520	1.79
(C) 47	"	"	"	1.2	0.55	2030	1.98
48※	0.15	0.45	"	0	0.48	940	2.00
49※	"	"	"	1.2	0.50	1180	2.14

注：※印試料はHfO₂無添加の場合と特性が好ましい値に達しない場合である。

さらに、音響変換素子の出力音圧を比較するには、共振周波数より十分低い慣性領域における出力音圧を測定することも重要である。すなわち、共振周波数より十分低い慣性領域における出力音圧が高ければ、音響変換素子として用いた場合に出力音圧が高くなると判断できる。

そこで、従来の圧電磁器組成物（PZT系）を用いた振動板と、本発明による圧電磁器組成物を用いた振動板の出力音圧を測定した結果を第3表（従来品を0（ゼロ）としたときの出力高圧変化）および第2図に示す。本発明によるセラミック振動板の出力音圧の方が、3.7～4.7 dB(300Hz) 高くなり、第2図に示すように従来品よりも優れている。

以下余白

第 3 表

(db)

ロット 周波数(Hz)	ア	イ	ウ	エ	オ	カ	キ	ク	ケ	コ	平均
100	4.6	4.4	4.5	4.6	4.2	4.0	4.1	4.2	4.5	4.3	4.3
300	4.7	4.4	4.0	4.5	4.0	3.7	3.7	3.8	4.3	4.0	4.1
1 K	6.8	6.0	5.8	6.4	5.2	4.4	4.2	4.8	6.4	5.6	5.6
3 K	4.0	4.8	5.0	4.5	4.0	4.8	5.0	4.5	3.6	4.4	4.5
10 K	2.4	5.6	2.0	3.0	1.6	4.8	1.2	2.2	1.8	5.0	3.0

例 2

(Sb₂O₃を副成分とする場合)

圧電磁器の試料を次のようにして製作した。まず、出発原料として高純度の酸化鉛PbO、酸化ニッケルNiO、五酸化ニオブNb₂O₅、酸化チタンTiO₂および酸化ジルコニウムZrO₂を所定の配合比(第1表および第2表の主成分組成割合)に秤量し、ボールミルにて8～15時間湿式混合し、均一なスラリーとした。このスラリーを乾燥させた後に、800～900℃にて1～3時間仮焼した。仮焼物をボールミルにて粉砕し同時に所定量(第3表および第4表中の主成分に対する重量%)の高純度三酸化アンチモンSb₂O₃を加えて2～10時間湿式混合した。この混合粉にバインダーとして樹脂(例えば、ポリビニルアルコール・PVA)を1wt%添加混練し、約1ton/cm²の圧力で直径14mm、厚さ1mmの円板に加圧成形した。そして、成形した円板を1180～1300℃にて1～5時間焼成した。この焼成品に銀ペーストを所定パターンで焼付けして電極を形成し、80～150℃のオイル中

で10～20分間、2～5kV/mmの直流電圧を印加して分極処理を行なった。このようにしてSb₂O₃を含有した(又は含有しない)Pb(Ni_{0.9}Nb_{0.1})TiZrO₃圧電磁器組成物(試料№1～11、12～43)が作られた。

得られた圧電磁器組成物の径方向電気機械結合係数k_r、比誘電率ε₃₃/ε₀、および誘電損失tanδを測定して、その結果を第4表および第5表に示す。

以下余白

第 4 表

試料 No	主 成 分			Sb ₂ O ₃ (wt%)	k _r	$\frac{\epsilon''}{\epsilon'}$	誘電損失 tan δ
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
1 ※	0.360	0.255	0.385	0	0.608	4330	1.50
2	"	"	"	0.1	0.616	4590	1.50
3	"	"	"	0.2	0.618	4620	1.60
4	"	"	"	0.3	0.595	4660	2.03
5	"	"	"	0.4	0.594	4690	2.00
6	"	"	"	0.5	0.594	4720	2.10
7	"	"	"	0.6	0.595	4730	1.95
8	"	"	"	0.7	0.595	4840	1.90
9	"	"	"	0.8	0.578	4935	2.10
10	"	"	"	1.0	0.567	4945	1.85
11	"	"	"	1.5	0.507	4110	2.00

注：※No 1 試料はSb₂O₃ 無添加の場合である。

第4表では主成分を一定としてSb₂O₃ 添加量を変えた場合であり、Sb₂O₃ 添加量0.1～1.0wt%の範囲で比誘電率 $\frac{\epsilon''}{\epsilon'}$ が向上し、誘電損失tan δ がSb₂O₃ 添加で向上している。ただ、電気機械結合係数k_rは微量添加では向上するが添加量が多くなるほど逆に低くなる。

下記第5表では主成分の組成割合を変えて、Pb₂O₃ 添加量を0.6wt%と一定にした場合であり、試料の組成を第3図の三元図中に示す。そして、Sb₂O₃ 無添加の比較試料の結果も第5表に示す。第3図中の五角形A、B、C、DおよびEで囲まれた領域においては、k_rが0.55以上でありかつ $\frac{\epsilon''}{\epsilon'}$ が2000以上であって、音響変換素子として用いる好ましい範囲である。

以下余白

第 5 表

試料 No	主 成 分 (mol)			Sb ₂ O ₃ (wt%)	k _r	$\frac{\tau}{\epsilon_{33}} / \epsilon_0$	誘電損失 tan δ (%)
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
12 ※	0.55	0.30	0.15	0	0.53	5370	2.22
13 ※	"	"	"	0.6	0.53	5860	2.34
14 ※	0.53	0.32	"	0	0.56	4900	2.00
(B) 15	"	"	"	0.6	0.55	5470	2.12
16 ※	0.50	0.365	0.135	0	0.53	4120	1.98
17 ※	"	"	"	0.6	0.52	4520	2.00
18 ※	"	0.35	0.15	0	0.58	6460	2.22
(A) 19	"	"	"	0.6	0.57	6730	2.40
20	0.45	"	0.20	0	0.62	6180	2.44
21	"	"	"	0.6	0.60	6510	2.66
22 ※	0.40	0.40	"	0	0.51	3090	1.15
23 ※	"	"	"	0.6	0.51	3330	2.00
24 ※	"	0.365	0.235	0	0.63	4010	2.05
25	"	"	"	0.6	0.62	4490	2.20
26 ※	"	0.34	0.26	0	0.55	2890	2.50
(C) 27	"	"	"	0.6	0.55	3260	2.55
28 ※	"	0.33	0.27	0	0.52	1640	2.80

第 5 表 (続き)

試料 No	主 成 分 (mol)			Sb ₂ O ₃ (wt%)	k _r	$\frac{\tau}{\epsilon_{33}} / \epsilon_0$	誘電損失 tan δ (%)
	Pb(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	PbTiO ₃	PbZrO ₃				
29 ※	0.40	0.33	0.27	0.6	0.52	1980	2.65
30 ※	0.35	0.40	0.25	0	0.56	3130	1.06
31	"	"	"	0.6	0.55	3610	1.20
32 ※	0.30	"	0.30	0	0.66	3100	1.46
33	"	"	"	0.6	0.64	3580	1.80
34 ※	0.25	0.425	0.325	0	0.60	2760	1.22
35	"	"	"	0.6	0.60	3140	1.20
36 ※	"	0.40	0.35	0	0.57	2030	1.10
(D) 37	"	"	"	0.6	0.55	2370	1.40
38 ※	0.22	0.445	0.335	0	0.56	2270	1.30
(E) 39	"	"	"	0.6	0.55	2850	1.42
40 ※	0.20	0.45	0.35	0	0.54	1890	1.22
41 ※	"	"	"	0.6	0.54	2120	1.42
42 ※	"	0.40	0.40	0	0.50	1520	1.79
43 ※	"	"	"	0.6	0.48	1910	1.94

注：※印試料はSb₂O₃無添加の場合と特性が好ましい値までに達しない場合である。

さらに、音響変換素子の出力音圧を比較するには、共振周波数より十分低い慣性領域における出力音圧を測定することも重要である。すなわち、共振周波数より十分低い慣性領域における出力音圧が高ければ、音響変換素子として用いた場合に出力音圧が高くなると判断できる。

そこで従来の圧電磁器組成物（PZT系）を用いた振動板と、本発明による圧電磁器組成物を用いた振動板の出力音圧を測定した結果を第6表（従来品を0としたときの出力音圧変化）および第4図に示す。本発明によるセラミック振動板の出力音圧の方が、1.8～2.4 dB(300Hz) 高くなり、第4図に示すように従来品よりも優れている。

以下余白

第 6 表

(db)

ロット 周波数(Hz)	ア	イ	ウ	エ	オ	カ	キ	ク	ケ	コ	平均
100	2.4	2.6	2.5	2.7	2.1	2.3	2.6	2.0	2.1	2.6	2.4
300	2.3	2.2	2.4	2.4	1.9	2.0	2.3	1.8	1.8	2.4	2.2
1 K	4.8	4.9	4.7	5.0	4.5	4.8	4.9	4.4	4.3	4.7	4.7
3 K	3.1	3.3	2.9	3.2	2.7	3.0	3.3	2.6	2.5	3.2	3.0
10 K	2.3	1.8	1.0	3.0	0.9	0.4	1.4	0.6	0.3	1.4	1.3

4. 図面の簡単な説明

第1図は第2表中の主成分組成を示す

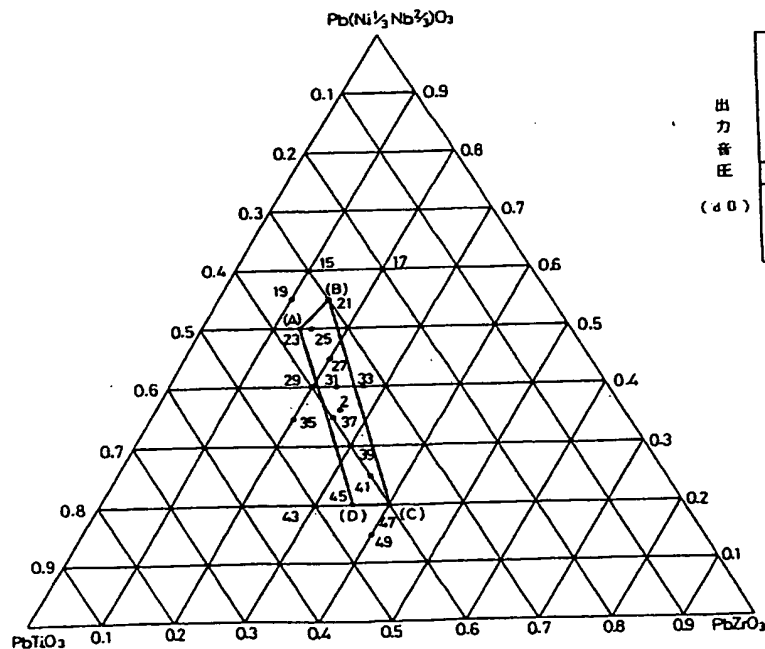
$Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - PbTiO_3 - PbZrO_3$ 三元図であり、

第2図は出力音圧と周波数との関係を HfO_2 添加の本発明に係る圧電磁器組成物および従来の圧電磁器組成物について説明するグラフであり、

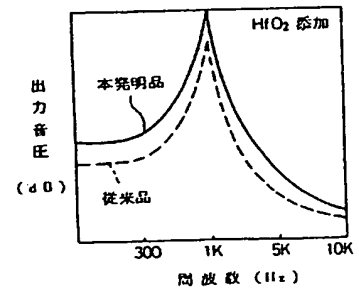
第3図は第5表中の主成分組成を示す

$Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - PbTiO_3 - PbZrO_3$ 三元図である。

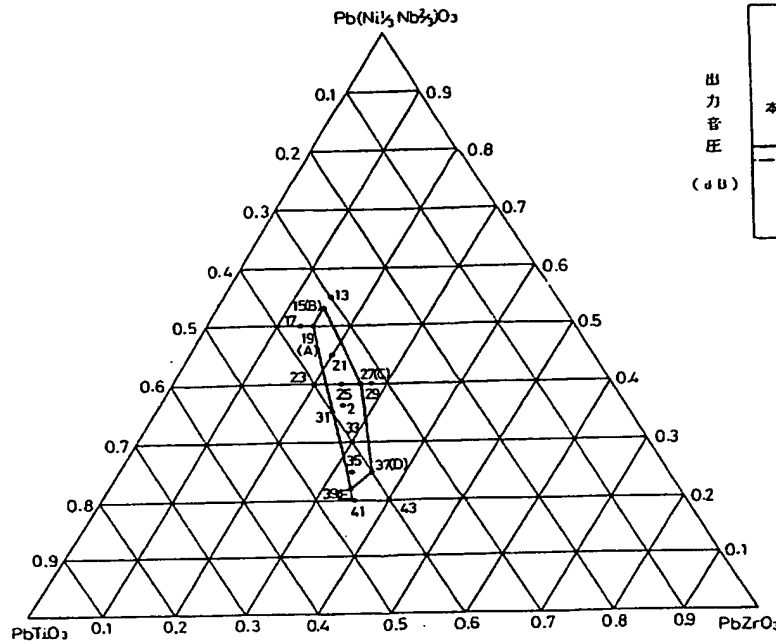
第4図は出力音圧と周波数との関係を Sb_2O_3 添加の本発明に係る圧電磁器組成物および従来の圧電磁器組成物について説明するグラフである。



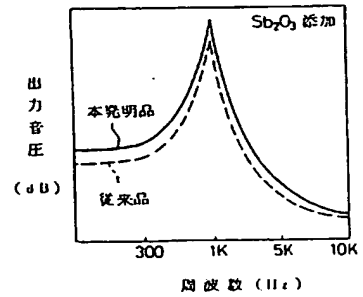
第1図



第2図



第 3 図



第 4 図

手続補正書(自発)

昭和62年5月8日

特許庁長官 黒田 明雄 殿

1. 事件の表示

昭和62年特許願第056822号

2. 発明の名称

圧電磁器組成物

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

名称 (018)岩崎通信機株式会社

4. 代理人

住所 千105 東京都港区虎ノ門一丁目8番10号

静光虎ノ門ビル 電話 504-0721

氏名 井理士 (6579) 青木 朗

(外5名)

5. 補正の対象

- (1) 明細書の「発明の詳細な説明」の欄
- (2) 明細書の「図面の簡単な説明」の欄
- (3) 図面(第2図および第4図)

6. 補正の内容

- (1) 明細書、「発明の詳細な説明」の欄

(7) 同書、第1頁、第14行目の

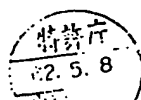
「 $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})TiZrO_3$ 」を「 $Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})TiZrO_3$ 」に補正する。

(4) 同書、第2頁、第1行目の「2成分」を「二成分」に補正する。

(7) 同書、第2頁、第3行目、第8行目、第9行目および第13行目の「3成分」を「三成分」に補正する。

(4) 同書、第2頁、第14行目および第3頁、第14行目の「電気機械結合係数」の前に「径方向」を挿入する。

(4) 同書、第2頁、第17行目の「径方向電気機械係数」を「径方向電気機械結合係数」に補正する。



特開昭63-225577(12)

(b) 同書、第5頁、第10行目の「出願原料」を「出発原料」に補正する。

(4) 同書、第7頁、第1表中の「 $\tan \delta$ 」を「 $\tan \delta (\%)$ 」に補正する。

(7) 同書、第14頁、第2行目および第13行目の「 Sb_2O_3 」を「 Sb_2O_5 」に補正する。

(7) 同書、第14頁、第4行目の「出願原料」を「出発原料」に補正する。

(7) 同書、第14頁、第7行目の「第1表および第2表」を「第4表および第5表」に補正する。

(7) 同書、第14頁、第11~12行目の「第3表および第4表」を「第4表および第5表」に補正する。

(7) 同書、第16頁、第4表中の「 $\tan \delta$ 」を「 $\tan \delta (\%)$ 」に補正する。

(7) 同書、第16頁、第4表中、試料No.の「11」を「11※」に補正する。

(7) 同書、第16頁、第4表外の注を下記のように補正する。

「注：※No.1試料は Sb_2O_3 、無添加の場合である。

※No.11試料は Sb_2O_3 、添加量が1.5wt%と過剰の場合である。」

(7) 同書、第17頁、第8行目の「 Pb_2O_3 」を「 Sb_2O_3 」に補正する。

(7) 同書、第18頁、第5表中、試料No.の「20」を「20※」に補正する。

(2) 明細書、「図面の簡単な説明」の欄

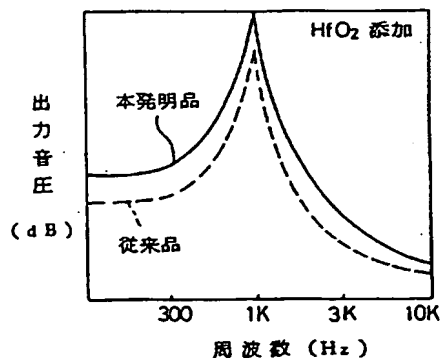
(7) 同書、第22頁、第2行目の「第2表」を「第1表および第2表」に補正する。

(7) 同書、第22頁、第7行目の「第5表」を「第4表および第5表」に補正する。

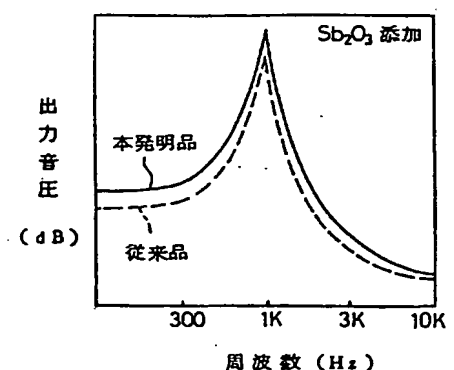
(3) 図面(第2図および第4図)を別紙のとおりに補正する。

7. 添付書類の目録

図面(第2図および第4図) 1通



第2図



第4図